TI-5

Atty. Dkt. No. 017447/01773.03.0

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant:

Tomohisa ARAI et al.

Title:

GIANT MAGNETOSTRICTIVE MATERIAL AND MANUFACTURING METHOD THEREOF, AND MAGNETOSTRICTIVE ACTUATOR AND MAGNETOSTRICTIVE

SENSOR THEREWITH

Appl. No.:

massiumed 0917

Filing Date:

February 9, 2001

Examiner:

Unassigned

Sheeter

Art Unit:

Unassigned

1742

CLAIM FOR CONVENTION PRIORITY

Assistant Commissioner for Patents Washington, D.C. 20231

Sir:

The benefit of the filing dates of the following prior foreign applications filed in the following foreign country is hereby requested, and the right of priority provided in 35 U.S.C. § 119 is hereby claimed.

In support of this claim, filed herewith are certified copies of said original foreign applications:

- Japanese Patent Application No. 2000-033967 filed February 10, 2000
- Japanese Patent Application No. 2000-113514 filed April 14, 2000.

Respectfully submitted,

Date: February 9, 2001

FOLEY & LARDNER
Washington Harbour
3000 K Street, N.W., Suite 500
Washington, D.C. 20007-5109
Telephone: (202) 672-5414

Facsimile:

(202) 672-5414 (202) 672-5399 Richard L. Schwaab
Attorney for Applicant

Registration No. 25,479

日本国特許庁 PATENT OFFICE

JAPANESE GOVERNMENT

10060/1000

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されるいる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 Date of Application:

2000年 2月10日

出 願 番 号 Application Number:

特願2000-033967

出 願 人 Applicant (s):

株式会社東芝

2001年 1月19日

特許庁長官 Commissioner, Patent Office 及川耕



特2000-033967

【書類名】

特許願

【整理番号】

DTY99-063

【提出日】

平成12年 2月10日

【あて先】

特許庁長官殿

【国際特許分類】

C22C 38/00

C22C 19/07

C22C 28/00

【発明の名称】

超磁歪材料とその製造方法、およびそれを用いた磁歪ア

クチュエータと磁歪センサ

【請求項の数】

20

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市磯子区新杉田町8番地 株式会社東芝

横浜事業所内

【氏名】

新井 智久

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市磯子区新杉田町8番地 株式会社東芝

横浜事業所内

【氏名】

山宮 秀樹

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市磯子区新杉田町8番地 株式会社東芝

横浜事業所内

【氏名】

岡村 正己

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県川崎市幸区神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番

地 株式会社東芝 研究開発センター内

【氏名】

小林 忠彦

【特許出願人】

【識別番号】

000003078

【氏名又は名称】 株式会社東芝

【代理人】

【識別番号】

100077849

【弁理士】

【氏名又は名称】

須山 佐一

【手数料の表示】

【予納台帳番号】

014395

【納付金額】

21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】

明細書 1

【物件名】

図面 1

【物件名】

要約書 1

【プルーフの要否】

要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 超磁歪材料とその製造方法、およびそれを用いた磁歪アクチュ エータと磁歪センサ

【特許請求の範囲】

【請求項1】 希土類元素と遷移金属元素とを主成分とする合金からなる超磁歪材料であって、

前記合金からなると共に、厚み方向に伸びる柱状晶を主体とする溶湯急冷フレーク材が、厚み方向に積層された状態で一体化されていることを特徴とする超磁 歪材料。

【請求項2】 前記溶湯急冷フレーク材の厚み方向への前記柱状晶の結晶方位が、略 {1,1,0} もしくは略 {1,1,1} であることを特徴とする、請求項1記載の超磁歪材料。

【請求項3】 前記溶湯急冷フレーク材の前記柱状晶の結晶配向のピーク比が、ランダム配向のピーク比に対して 1.5倍以上であることを特徴とする、請求項2記載の超磁歪材料。

【請求項4】 前記溶湯急冷フレーク材は前記柱状晶を体積比で 70%以上含むことを特徴とする、請求項1記載の超磁歪材料。

【請求項5】 前記溶湯急冷フレーク材の平均厚みが10~1000 μm であることを特徴とする、請求項1記載の超磁歪材料。

【請求項6】 前記溶湯急冷フレーク材の厚みのばらつきが、前記平均厚みの±20%以内であることを特徴とする、請求項記載5の超磁歪材料。

【請求項7】 前記溶湯急冷フレーク材の70重量%以上の寸法が、

(フレークの短径) > 3× (フレークの平均厚み)で

かつ (フレークの長径) / (フレークの短径) = 1~20

であることを特徴とする、請求項1記載の超磁歪材料。

【請求項8】 前記合金は、

一般式:R(T_xM_{1-x})_z

(式中、RはYを含む希土類元素から選ばれる少なくとも 1種の元素を、Tは鉄 、コバルトおよびニッケルから選ばれる少なくとも 1種の元素を、Mは前記T元 素以外の遷移金属元素から選択される元素を示し、xおよびzは $0.5 \le x \le 1$ 、 $1.4 \le z \le 2.5$ を満足する数である)

で実質的に表される組成を有することを特徴とする、請求項1記載の超磁歪材料。

【請求項9】 前記合金の酸素含有量が20000ppm以下であることを特徴とする、請求項1記載の超磁歪材料。

【請求項10】 前記合金のフッ素および塩素の含有量が合計量で200ppm以下であることを特徴とする請求項1の超磁歪材料。

【請求項11】 希土類元素と遷移金属元素とを主成分とする合金を溶湯急 冷してフレーク材を作製する工程と、

前記溶湯急冷フレーク材を厚み方向に積層して一体化する工程と を有することを特徴とする超磁歪材料の製造方法。

【請求項12】 前記一体化工程をホットプレスまたは放電プラズマ焼結により実施することを特徴とする、請求項11記載の超磁歪材料の製造方法。

【請求項13】 前記一体化工程において、焼結助材として前記溶湯急冷フレーク材と同一成分の微粉末もしくは前記溶湯急冷フレーク材と融合することで目的成分となる微粉末を、前記溶湯急冷フレーク材に対して30質量%以下の範囲で添加することを特徴とする、請求項12記載の超磁歪材料の製造方法。

【請求項14】 前記一体化工程において、樹脂をバインダとして前記溶湯 急冷フレーク材を一体化することを特徴とする、請求項11記載の超磁歪材料の 製造方法。

【請求項15】 前記溶湯急冷フレーク材の70重量%以上の寸法が、

(フレークの短径)> 3×(フレークの平均厚み)で

かつ (フレークの長径) / (フレークの短径) = 1~20

であることを特徴とする、請求項11記載の超磁歪材料の製造方法。

【請求項16】 さらに、前記溶湯急冷フレーク材に対して結晶成長および /または均質化のための熱処理を施す工程を有することを特徴とする、請求項1 1記載の超磁歪材料の製造方法。

【請求項17】 前記溶湯急冷フレーク材は厚み方向に伸びる柱状晶を主体

とすることを特徴とする、請求項11記載の超磁歪材料の製造方法。

【請求項18】 前記一体化工程において、前記溶湯急冷フレーク材に振動を加え、前記柱状晶の結晶方位を配向させることを特徴とする、請求項11記載の超磁歪材料の製造方法。

【請求項19】 請求項1ないし請求項10のいずれか1項記載の超磁歪材料を具備することを特徴とする磁歪アクチュエータ。

【請求項20】 請求項1ないし請求項10のいずれか1項記載の超磁歪材料を具備することを特徴とする磁歪センサ。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】

本発明は、磁気-機械変位変換デバイスなどに用いられる超磁歪材料とその製造方法、およびそれを用いた磁歪アクチュエータ、磁歪センサに関する。

[0002]

【従来の技術】

磁性体に外部磁界を印加した際に磁性体が変形する磁歪を応用したデバイスとしては、変位制御アクチュエータ、磁歪センサ、磁歪フィルタ、超音波振動子、超音波遅延線などが知られている。これらの用途では、Ni基合金、Fe-Co合金、フェライトなどが、磁歪材料として用いられてきた。

[0003]

近年、計測工学の進歩や精密機械分野の発展に伴い、ミクロンオーダーの微小変位制御に不可欠な変位駆動部の開発が求められている。このような変位駆動部の機構の一つとして、磁歪合金を用いた磁気ー機械変位変換デバイスが有力視されている。しかし、従来の磁歪合金では変位の絶対量が不十分であり、またミクロンオーダーの精密駆動部品材料としては絶対駆動変位量のみならず、精密制御の点からも満足し得るものではなかった。

[0004]

このような要求に対して希土類-遷移金属系の磁歪合金が高磁歪材料として注目され、各所で研究されていると共に、一部実用化されている(特公昭61-33892

号公報、米国特許第 478,258号明細書など参照)。

[0005]

最初に実用化された超磁歪材である希土類-遷移金属系の異方性磁歪合金は、 Tbなどの高価な原料を使用する上に、単結晶として用いられていたことから、 ブリッジマン法などの高価なプロセスが必要であり、これらのことから軍事用な どの用途に限られていた。

[0006]

これに対して、磁歪材料としての特性は単結晶より若干劣るものの、超磁歪材が広く使われるためのコスト低減方法として、次の 2つの方法が実用化されている。第1の方法は一方向凝固法、すなわち一端を水冷して温度勾配を付けた鋳型に鋳造することによって、結晶方位を揃えた多結晶インゴットを作製し、そこから必要形状に切出す方法である。

[0007]

第2の方法は、粉末冶金法でニアネットに加工することによって、高価な材料の歩留りを上げる方法である。すなわち、粉末状の組成の異なる 2種類以上の原料を用意し、これらの混合物を少なくとも一方の容易磁化方向が磁歪を取出す方向となるように磁場配向させつつ成形し、これを焼結させることによって、目的組成および目的配向の焼結合金を得る方法である。

[0008]

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、上述した一方向凝固法および粉末冶金法のいずれの方法にも、 次のような欠点がある。

[0009]

すなわち、一方向凝固法には形状や大きさに制限がある。製品の目的形状が小さな場合には、例えば図12の概略透視図に示すように、大きな円柱状インゴットから切出す必要があったり、また目的形状がインゴット形状より大きな場合には、一旦所定の形状に切出したものを繋ぎ合せる必要がある。いずれにしても、図13に示すように、切りしろとして高価な材料を無駄にする上に、一方向凝固といってもインゴットの配向方向の上下端には等軸晶ができてしまい、この部分

は廃棄することになるなど、材料の利用効率が低いというような問題があった。 また、希土類-遷移金属系の磁歪材料は脆性材料であるため、加工に手間がかか るというような問題もある。

[0010]

一方、粉末冶金法は単結晶に特性が近似する程度に、すなわち粒径10μm以下までにインゴットを微粉砕し、このような微粉末を金型に入れてニアネットに磁場成形して焼結するため、材料の無駄は最小限にすることができるものの、インゴットを微粉砕して得られた粉末は比表面積が大きいために非常に酸化しやすく、粉砕時、成形時、焼結時などにおいて酸素濃度が著しく増加するという問題がある。酸素濃度の増加は磁歪材料の特性劣化の原因となり、またこれにより磁歪材料の歩留りの低下などを招いている。

[0011]

本発明はこのような課題に対処するためになされたもので、材料の利用効率や 製造歩留りを高めると共に、酸素濃度の増加などによる特性の低下を抑制するこ とによって、高性能な希土類ー遷移金属系の超磁歪材料を安価に提供することを 目的としており、またそのような超磁歪材料を再現性よく製造することを可能に した超磁歪材料の製造方法を提供することを目的としている。さらに、そのよう な超磁歪材料を用いることによって、特性や信頼性を高めると共に、製造コスト の低減を図った磁歪アクチュエータおよび磁歪センサを提供することを目的とし ている。

[0012]

【課題を解決するための手段】

本発明の超磁歪材料は、請求項1に記載したように、希土類元素と遷移金属元素とを主成分とする合金からなる超磁歪材料であって、前記合金からなると共に、厚み方向に伸びる柱状晶を主体とする溶湯急冷フレーク材が、厚み方向に積層された状態で一体化されていることを特徴としている。

[0013]

また、本発明の超磁歪材料の製造方法は、請求項11に記載したように、希土 類元素と遷移金属元素とを主成分とする合金を溶湯急冷してフレーク材を作製す る工程と、前記溶湯急冷フレーク材を厚み方向に積層して一体化する工程とを有することを特徴としている。本発明の超磁歪材料の製造方法において、一体化工程には請求項12に記載したホットプレスや放電プラズマ焼結、また請求項14に記載した樹脂バインダによる一体化などを適用することができる。

[0014]

本発明の超磁歪材料は、上記したように溶湯急冷フレーク材を用いたことに特徴を有する。すなわち、溶湯急冷法により得られるフレーク材は、その厚み方向に伸びる柱状晶が主体となる。希土類一遷移金属系の超磁歪材料では、柱状晶の厚み方向への成長方位が磁歪の大きい結晶方位と一致するため、溶湯急冷フレーク材をその形状効果などを利用して厚み方向に積層して一体化することによって、磁歪特性に優れた超磁歪材料を再現性よく得ることができる。

[0015]

上述したような溶湯急冷フレーク材の積層・一体化材からなる超磁歪材料では、柱状晶の配向状態およびフレーク材の積層状態に基づいて、材料全体の結晶方位を揃えることができる。従来の一方向凝固材は結晶方位がなかなか揃いにくいために、材料の四辺に切りしろや廃棄する部分が不可避的に生じていたが、本発明ではこうした無駄な部分が生じないことから、超磁歪材料の製造コストを大幅に低減することが可能となる。また、本発明の超磁歪材料の原材料となる溶湯急冷フレーク材は、従来の粉末冶金法で原料粉末として用いられていた微粉末に比べて比表面積が小さい、すなわちある程度の表面積を有することから、酸化による磁歪特性の低下を抑制することができる。

[0016]

本発明の超磁歪材料において、溶湯急冷フレーク材の厚み方向への柱状晶の結晶方位は請求項2に記載したように、略 {1,1,0} もしくは略 {1,1,1} であることが好ましい。ここで言う柱状晶の結晶方位は、柱状晶の成長する方向が {1,1,0} もしくは {1,1,1} であるときに、このような柱状晶の結晶成長方向がフレーク材の板厚方向に対して±30°以内であればよく、さらにはこのような条件を満足する柱状晶を75体積%以上含んでいることが好ましい。

[0017]

本発明で用いる溶湯急冷フレーク材は、上述したように厚み方向に伸びる柱状晶を主体とするものであり、具体的には請求項4に記載したように、このような柱状晶を体積比で 70%以上含むことが好ましい。さらに、溶湯急冷フレーク材を構成している希土類一遷移金属合金は、請求項9に記載したように酸素量含有量が20000ppm以下であることが好ましく、また請求項10に記載したようにフッ素および塩素の含有量が合計量で200ppm以下であることが好ましい。

[0018]

本発明の磁歪アクチュエータは、請求項19に記載したように、上記した本発明の超磁歪材料を具備することを特徴としている。また、本発明の磁歪センサは、請求項20に記載したように、上記した本発明の超磁歪材料を具備することを特徴としている。

[0019]

【発明の実施の形態】

以下、本発明を実施するための形態について説明する。

[0020]

図1は、本発明の一実施形態による超磁歪材料の構成を模式的に示す図である。同図において、1は溶湯急冷フレーク材であり、このような溶湯急冷フレーク材1を厚み方向に積層し、その状態で一体化することによって、本発明の超磁歪材料2が構成されている。

[0021]

溶湯急冷フレーク材1は、希土類元素と遷移金属元素とを主成分とする合金からなる。超磁歪特性を示す希土類-遷移金属合金としては、

一般式:R($T_x M_{1-x}$)_z

(式中、RはYを含む希土類元素から選ばれる少なくとも 1種の元素を、TはF e、CoおよびNiから選ばれる少なくとも 1種の元素を、Mは前記T元素以外の遷移金属元素から選択される元素を示し、xおよびzは $0.5 \le x \le 1$ 、 $1.4 \le z \le 2.5$ を満足する数である)

で実質的に表される組成を有する合金が挙げられる。

[0022]

希土類元素としては、Y、La、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Luなどを用いることができる。特に、Pr、Nd、Sm、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Tb-Dy、Tb-Ho、Tb-Pr、Sm-Yb、Tb-Dy-Ho、Tb-Dy-Pr、Tb-Pr-Ho、Pr-Nd-Ceなどを使用することが好ましい。

[0023]

また、遷移金属元素Tは、FeおよびCoから選ばれる少なくとも 1種であることが好ましい。具体的な希土類一遷移金属合金としては、例えばYFe $_2$ 、SmFe $_2$ 、GdFe $_2$ 、TbFe $_2$ 、Tb(NiFe) $_2$ 、Tb(CoFe) $_2$ 、DyFe $_2$ 、HoFe $_2$ 、ErFe $_2$ 、TmFe $_2$ 、Tb $_x$ Dy $_{1-x}$ Fe $_2$ (0 \leq x \leq 1.0)、Tb $_x$ Dy $_{1-x-y}$ Ho $_y$ Fe $_2$ (0 \leq x \leq 1.0)、0 \leq y \leq 1.0)、Sm $_x$ Dy $_{1-x}$ Fe $_2$ (0 \leq x \leq 1.0)、Sm $_x$ Ho $_{1-x}$ Fe $_2$ (0 \leq x \leq 1.0)などが挙げられる。

[0024]

溶湯急冷フレーク材1は、上述したような希土類元素Rと遷移金属元素Tとを 主成分とする合金溶湯を、単ロール法などで急冷することにより得られたもので ある。溶湯急冷法は、金属溶湯を鋳造法よりも大きな冷却速度で急冷凝固させる 方法であり、結晶粒の微細化を図る、偏析を除去する、溶質の固溶限度を拡大す る、準安定結晶相を形成する、非晶質材料を形成する、などの特徴を有する。

[0025]

本発明では、希土類元素Rと遷移金属元素Tとを主成分とする合金溶湯を急冷してフレーク状とする際に、その厚み方向に柱状晶が成長すること、さらにこの柱状晶の結晶成長方位が磁歪特性にとって都合がよいこと、すなわち板厚方向に磁歪が大きい結晶方位が成長しやすいことを利用したものである。本発明においては、上記したような柱状晶を体積比で 70%以上含む溶湯急冷フレーク材1、すなわち等軸晶と柱状晶との体積比が 0:100~ 30:70の範囲である溶湯急冷フレーク材1を用いることが好ましい。柱状晶の体積比が 70%未満であると、希土類一遷移金属合金の磁歪特性を十分に利用することができないおそれがある。

[0026]

図1に示した超磁歪材料2は、上述したような溶湯急冷フレーク材1をその厚み方向に積層し、その状態で一体化したものである。図中矢印は溶湯急冷フレーク材1の結晶成長方向であり、この方向に対して磁界を印加することによって、大きな磁歪を得ることができる。

[0027]

溶湯急冷フレーク材1の厚み方向への柱状晶の結晶方位は、略 {1,1,0} もしくは略 {1,1,1} であることが好ましい。これらの結晶方位は磁歪が大きい方位である。柱状晶の結晶方位は、柱状晶の成長する方向が {1,1,0} もしくは {1,1,1} であるときに、このような柱状晶の結晶成長方向がフレーク材の板厚方向に対して±30°以内であればよい。溶湯急冷フレーク材1は、このような条件を満足する柱状晶を75体積%以上含んでいることが好ましい。

[0028]

柱状晶の結晶方位は $\{1,1,0\}$ もしくは $\{1,1,1\}$ から $\pm 30^\circ$ 以内であり、好ましくは $\pm 20^\circ$ 以内、より好ましくは $\pm 15^\circ$ 以内である。溶湯急冷フレーク材1の厚み方向と結晶方位との成す角度は、EBSD装置(反射電子回折装置)を用い、図11(a)に示すようにフレーク材1の厚み方向と垂直な複数の断面 S_1 、 S_2 …を削り出し、これらをそれぞれ対象にして、図11(b)に示すように結晶単位で測定した値の平均値を示すものとする。 $\{1,1,0\}$ もしくは $\{1,1,1\}$ からずれるほど、利用方向の磁歪値が低下する。

[0029]

上記したような溶湯急冷フレーク材1の積層・一体化材からなる積層型超磁歪材料2によれば、希土類一遷移金属合金が有する大きな磁歪を良好に利用することができる。溶湯急冷フレーク材1を構成する柱状晶の結晶成長方向は、その板厚方向に対して±15°以内であることがより好ましい。また、上記した条件を満足する柱状晶の体積比は80%以上であることがより好ましく、さらには85%以上であることが好ましく、望ましくは90%以上である。

[0030]

本発明の超磁歪材料2においては、X線ディフラクトメータ (XRD) を用いた測定で、溶湯急冷フレーク材1の結晶配向のピーク比がランダム配向のピーク

比に対して 1.5倍以上強いことが好ましい。例えば、図2に示すように、溶湯急冷フレーク材1の積層に乱れが生じた場合においても、ずれ角度 α が30° までであれば特に問題はない。このような積層状態が乱れたフレーク材1は全体の 5体積% 以下とすることが好ましい。

[0031]

また、溶湯急冷フレーク材 1 の平均厚みは10~1000μm の範囲であることが好ましい。平均厚みが10μm 未満であると、積層・一体化する際にフレーク材 1 に割れなどが生じやすくなり、柱状晶の結晶配向性を阻害するおそれがある。一方、平均厚みが1000μm を超えると、溶湯急冷フレーク材 1 の積層性が低下して、やはり柱状晶の結晶配向性を阻害するおそれがある。冷却速度の均一性や結晶の配向性などの点から溶湯急冷フレーク材 1 の厚みは均一であることが好ましい。具体的には、フレーク材 1 の厚みのばらつきは平均厚みの±20% 以内であることが好ましく、さらには平均厚みの±10% 以内であることがより好ましい。

[0032]

ここで、溶湯急冷フレーク材1の平均厚みは、ポイントマイクロメータ(先端 半径R=0.5)により、フレーク材1の幅方向で端面より 0.5mmの範囲を除く部分の厚みを、幅方向および長手方向で無作為に20点以上測定し、得られた値を平均して求めた値とする。厚みのばらつきは、上記した平均値と厚みの最大値との差の平均値に対する比率および上記した平均値と厚みの最小値との差の平均値に対する比率である。好ましい範囲は30μm以上 600μm以下、さらに好ましくは50μm以上 500μm以下である。

[0033]

さらに、溶湯急冷フレーク材1の形状(寸法)は、(フレークの短径) > 3× (フレークの平均厚み)で、かつ(フレークの長径) / (フレークの短径) = 1 ~20の範囲であることが好ましく、このような形状を有する溶湯急冷フレーク材 1を70質量%以上含んでいることが好ましい。なお、溶湯急冷フレーク材1単体 の斜視図を図3に示す。上記したような形状を有する溶湯急冷フレーク材1を用 いることで、より容易にフレーク材1の面を揃えて積層することができ、これに より柱状晶を配向性を高めることが可能となる。

[0034]

本発明の超磁歪材料2において、溶湯急冷フレーク材1を構成する希土類-遷移金属合金の酸素含有量は20000ppm以下であることが好ましい。酸素は磁歪特性に悪影響を及ぼす不純物であり、主に希土類原料、溶解・熱処理、成形体の保管時、焼結時などの雰囲気ガス中から不純物として持ち込まれる。酸素量の増加と共に磁歪量は低下し、機械的強度についても悪影響を及ぼすことから、実用上は20000ppmが限度であり、好ましくは10000ppm以下である。本発明の溶湯急冷フレーク材1の積層・一体化材からなる超磁歪材料2では、希土類-遷移金属合金中の酸素量の増大を抑制することができる。

[0035]

さらに、本発明の超磁歪材料 2 において、不可避不純物としてのフッ素および 塩素の含有量は合計量として200ppm以下とすることが好ましい。フッ素や塩素は 主に希土類原料から持ち込まれ、合金溶湯の急冷性を低下させたり、また磁歪特 性、機械的信頼性を阻害する不純物である。従って、このような特性低下を抑制 する上で、フッ素および塩素の含有量は合計量として200ppm以下とすることが好 ましい。

[0036]

図1に示した超磁歪材料2では図中矢印の方向、すなわち溶湯急冷フレーク材1の厚み方向(柱状晶の結晶成長方向)に磁界が印加され、この方向(結晶方向)の磁歪を利用して、磁歪アクチュエータや磁歪センサが構成される。前述したように、溶湯急冷フレーク材1を主として構成する柱状晶は磁歪が大きい結晶方位が成長方向となるため、このような溶湯急冷フレーク材1を厚み方向に揃えて積層することによって、大きな磁歪を確実に利用することが可能となる。すなわち、磁歪特性に優れた超磁歪材料2が再現性よく得られる。本発明の超磁歪材料2は例えば200ppm以上の磁歪量を有する。磁歪量は300ppm以上であることが好ましく、さらに好ましくは500ppm以上である。

[0037]

その上で、溶湯急冷フレーク材1の積層・一体化材からなる超磁歪材料2では 、柱状晶の配向状態およびフレーク材の積層状態に基づいて、材料全体の結晶方 位を揃えることができるため、従来の一方向凝固材のような材料の無駄を省くことが可能となる。これによって、超磁歪材料の製造コストを大幅に低減することができる。また、溶湯急冷フレーク材1は、従来の粉末冶金法で原料粉末として用いられていた微粉末に比べて比表面積が小さいことから、酸化などによる磁歪特性の低下を抑制することができる。これによって、磁歪特性並びに製造歩留りを向上させることが可能となる。本発明における製造コストの低減には、製造歩留りの向上も寄与している。

[0038]

本発明の超磁歪材料2は、例えば以下のように製造される。

まず、希土類元素と遷移金属元素を主成分とする合金溶湯を急冷して、溶湯急冷フレーク材を作製する。具体的には、ストリップキャスト法などの溶湯急冷法で、所望の柱状晶および結晶配向状態を有するフレーク材を作製し、これを必要に応じて数10μm~数10mm程度に破砕する。本発明では、このようなフレーク材の形状効果を利用して、必要とする結晶配向を得ているため、磁場成形のように微粉末とする必要がなく、また酸化の影響を受け難いという特徴を有する。

[0039]

溶湯急冷法としては、ストリップキャストなどの単ロール法または双ロール法を用いることができる。ロールの材質は熱伝導率の点で銅系合金が好ましいが、Fe系の合金であってもよい。ロールの周速はロールと溶湯との濡れ性、溶湯とロールとの接触距離、ロールの水冷のされ方などにより変化するため、一概に決められないが、早すぎる場合は等軸晶が多くなり好ましくない。また、遅すぎる場合には所望の配向が得られなくなる。

[0040]

具体的には、図4 (a) に示すように冷却速度が速い、すなわち急冷しすぎると等軸晶ができてしまい、厚みの薄い一部に等軸晶を含むフレークとなる。また、冷却速度が遅すぎると、図4 (c) に示すように、フレークの厚みが厚くなって断面が歪み、歪んだ部分に等軸晶ができてしまう。これに対して、適度な冷却速度を選択することによって、図4 (b) に示すように、柱状晶から主として構成され、かつ均一な厚みを有するフレークが得られる。

[0041]

溶湯急冷フレーク材の作製工程においては、フレーク材の70重量%以上の寸法が、(フレークの短径)> 3×(フレークの平均厚み)で、かつ(フレークの長径)/ (フレークの短径) = 1~20となるように急冷条件を制御したり、また急冷後の破砕条件を制御することが好ましい。

[0042]

上述したような溶湯急冷フレーク材は、結晶成長および/または均質化のための熱処理を施した後に、積層一体化することが好ましい。この際の熱処理温度は800~1200℃の範囲とすることが好ましい。このような温度で溶湯急冷フレーク材を熱処理することによって、磁歪特性をより一層向上させることができる。なお、結晶成長および/または均質化のための熱処理は、積層一体化した後に実施することも可能である。さらに、均質化熱処理は残留歪みを除去する効果も有している。

[0043]

次に、上述した溶湯急冷フレーク材をその形状効果を利用して、図1に示したように厚み方向を揃えて積層する。フレーク材を積層するにあたって、フレーク材に振動を加えて結晶の配向性、すなわち柱状晶の結晶成長方向の配向性を高めるようにしてもよい。積層したフレーク材は、例えばホットプレスや放電プラズマ焼結などの焼結法により一体化される。焼結温度は 800~1200℃の範囲とすることが好ましい。また、フレーク材の一体化は、樹脂をバインダとして用いて実施してもよい。

[0044]

溶湯急冷フレーク材を焼結して一体化するにあたって、焼結助材としてフレーク材と同一成分の微粉末、もしくはフレーク材と融合することにより目的成分となる微粉末を使用してもよい。このような焼結助材の添加量は、フレーク材に対して30質量%以下とすることが好ましい。焼結助材にはB、C、Siなどの融点降下元素の添加された微粉末が用いられる。

[0045]

本発明の超磁歪合金の製造方法においては、溶湯急冷法によって一方向凝固法

と同じように結晶方位を板厚方向に最適化したフレーク状素材を作製し、これを必要に応じて破砕したものを、成形型内で形状効果を使って板厚方向に積層し、さらにこれを例えばホットプレス、放電プラズマ焼結などを用いてニアネットのバルク体としている。従って、低コストで低酸素濃度の優れた磁歪特性を持つ超磁歪材料を提供することができる。

[0046]

本発明の超磁歪材料は、探査、土木・建築、精密機械、産業機械、電気・電子 、資源・エネルギー、航空・宇宙・自動車、医療などの多岐にわたる分野での利 用が期待されるものである。

[0047]

例えば、探査分野においては油田や漏水のための地中探査、海洋調査のための海洋トモグラフィや潜水艦探索用のソナー(音波航行測距装置)、土木・建築分野においてはビルの耐震や半導体製造装置の防振といったアクティブ防振、騒音対策用のアクティブ防音、精密機械分野においてはカメラのオートフォーカス、光学ミラーの位置決め、リニアモータ、産業機械分野においては精密位置決め用のマイクロポジショナ、ロボットアームの駆動、超音波洗浄器、アクティブ防振、液送ポンプ、電気・電子分野においては音響スピーカ、弾性波フィルタ素子、携帯電話などの振動子、磁気ヘッド用の微調アクチュエータ、資源・エネルギー分野においては発電、航空・宇宙・自動車分野においては燃料噴射装置、高速バルブ、ロック機構、可変ロータブレード、ノックセンサ、トルクセンサ、医療分野においてはカテーテル、補聴器、生態用マイクロポンプなどの用途が期待されている。

[0048]

これらの用途の中でも、本発明の超磁歪材料を使用したデバイスは、主にアクチュエータとセンサに大別される。すなわち、本発明の超磁歪材料は、磁歪アクチュエータの駆動部、もしくは磁歪センサのセンサ部などとして使用される。このように、本発明の磁歪アクチュエータおよび磁歪センサは、駆動部もしくはセンサ部として本発明の超磁歪材料を具備するものである。

[0049]

本発明の超磁歪材料をアクチュエータに使用する場合には、希土類元素として 主にTbが用いられる。アクチュエータの具体例としては、自動車などの内燃機 関に用いる燃料噴射弁、油圧部品、スピーカやマイクロホンのような音響装置、 工作機械、精密位置決め装置などが挙げられる。また、センサに使用する場合に は、希土類元素として主にSmが用いられる。センサの具体例としては、歪セン サ、トルクセンサ、振動センサ、加速度センサなどが挙げられる。

[0050]

【実施例】

次に、本発明の具体的な実施例について述べる。

[0051]

実施例1

 ${
m Tb}_{0.5}~{
m Dy}_{0.5}~{
m (Fe}_{0.9}~{
m Mn}_{0.1}~{
m)}_{1.95}$ 組成の合金から、ストリップキャスト法と呼ばれる単ロール式の溶湯急冷法によって、厚み $100\sim300\,\mu\,{
m m}$ 、幅30 mmのフレーク(薄片)を作製した。なお、溶湯急冷時のロールの速度は 10m/秒であった。

[0052]

得られたフレークは、ロール接触面および自由凝固面側に僅かにチル晶が生じていたが、主体は厚み方向に伸びる柱状晶からなっていた。結晶方位をXRDで調べたところ、フレークの厚み方向にほぼ {1,1,0} に配向していた。また、薄片の断面観察から柱状晶の体積比率(面積比から換算)と柱状晶の成長方向を計測したところ、柱状晶の成長方向と板厚方向とのなす角度が15°以内である柱状晶の比率は85体積%であった。

[0053]

上述したフレークを10mm以下の大きさに破砕し、これに振動を加えながらホットプレスの型内でフレークの厚み方向が成形体の長手方向になるように積層した。次いで、真空排気した後に、アルゴン雰囲気下にて1000℃でホットプレスして、外径20mm、長さ30mmの円柱状試料を得た。

[0054]

上記した円柱状試料に 800℃で均質化熱処理を行った後、10× 5× 3mmの寸法

の測定用試験片を切出して磁歪量を測定した。その結果、磁界強さ 239kA/mでの磁歪量は1100~1200ppm と良好な値を示した。なお、柱状晶の成長方向と板厚方向とのなす角度が15°以内である柱状晶の比率は63体積%である薄片を用いた場合には、磁歪量は上記のものに対して半減した。

[0055]

また、Tb_{0.4} Dy_{0.6} (Fe_{0.9} Mn_{0.1})_{1.93}組成の合金フレークを、上記した方法と同一の方法で作製したところ、柱状晶を主体とする組織が得られた。柱状晶は厚み方向に対してほぼ {1,1,1}に配向していた。このようなフレークを用いて、同様な方法で円柱状試料を作製し、さらに測定用試験片を切出して磁歪量を測定したところ、 350~450ppmであった。

[0056]

比較例1

実施例1と同組成の合金からなる外径60mm、長さ60mmの円柱状試料を一方向凝固法により作製し、 900℃の均質化熱処理を行った後に、異常組織となっている端部各10mmを切断した。切断面の結晶方位をXRDで調べたところ、 {1,1,0} にほぼ配向していた。

[0057]

この試料から10× 5× 3mmの寸法に測定用試験片を切出し、磁歪値を測定したところ、磁界強さ 239kA/mで1550~1650ppm の値を示した。ただし、異常組織を切断する必要があったことから、材料コストの増大を招いた。

[0058]

比較例2

実施例 1 と同じ方法で、T $b_{0.5}$ D $y_{0.5}$ (F $e_{0.9}$ M $n_{0.1}$) 1.95 組成の合金から、厚みが $1000\sim1200$ μ m のフレークを急冷ロールの速度を 1/2にして作製した。得られたフレーク(薄片)はロール接触面には僅かにチル晶、自由凝固面側には $100\sim300$ μ m の厚みで等軸晶が生じていた。その間は厚み方向に伸びる柱状晶からなっていた。自由凝固面側から結晶方位をXRDで調べたところ、結晶方位に配向性は認められなかった。

[0059]

このようなフレーク材を10mm以下の大きさに破砕し、ホットプレスの型内に積層した。真空排気した後に、アルゴン雰囲気下にて1000℃で熱間成形して外径20mm、長さ30mmの円柱状試料を得た。 800℃で均質化熱処理を行った後、10× 5× 3mmの寸法に測定用試験片を切出して磁歪量を測定したところ、磁界強さ 239kA/mで 340~660ppm という低い磁歪量しか得られなかった。

[0060]

実施例2

実施例1と同じ方法で作製したフレークを10mm以下の大きさに破砕し、これに振動を加えながら、図5に示すような放電プラズマ焼結用の型内でフレークの厚み方向が成形体の長手方向になるように積層した。

[0061]

真空排気した後、アルゴン雰囲気下にて30~50MPa の圧力で放電プラズマ焼結を行い、外形20mm、長さ20mmの円柱状試料を得た。1000℃で均質化熱処理を行った後、10×5×3mmの寸法に測定用試験片を切出して磁歪量を測定したところ、磁界強さ 239kA/mで1120~1260ppm の磁歪量を示した。

[0062]

比較例3

実施例1と同組成の合金を石英ノズルで溶解し、直径 0.7mmの丸穴より急冷ロールに吹きつけてフレークを作製した。得られたフレーク寸法は厚み 230~ 260 μm 、幅 0.7~ 0.8mmであった。フレーク状態での配向をΧRDで調べたところ、 {1,1,0} にほぼ配向していた。

[0063]

これを10mm以下の大きさに破砕し、ホットプレスにて実施例1と同様にして、成形、熱処理、測定用試験片の切出しを行った。磁歪量を測定したところ、磁界強さ 239kA/mで 870~1010ppm の値を示した。

[0064]

フレーク状態での配向は良いが、厚みに対して幅が狭いために形状効果がうまく働かず、成形時のフレークの積層が乱れ、これによりやや磁歪値が低くなった ものと考えられる。断面の組織を顕微鏡観察したところ、要望する向きに対して 傾斜しているフレークの痕跡が見られた。また、比較的長いフレークの方が要望 する向きに対して傾斜する傾向が見られた。長いフレークは絡み合ってしまって 流動性が悪く、形状効果による厚み方向での積層が難しいものと思われる。

[0065]

以上より、粉砕したフレークの短径はフレークの厚みの 3倍よりも大きいことが好ましいことが分かる。また、あまり長細い形状も好ましくなく、長径は短径の20倍より小さいことが好ましい。

[0066]

実施例3~7

ロールの周速、材質、石英ノズルの丸穴を調整し、実施例1と同組成の合金を 溶湯急冷し、本発明で規定した厚さを有する種々のフレークを作製した。

[0067]

これらの自由凝固面側をXRDで測定を行った。 {1,1,0} 方向を示すピーク比がランダム配向の場合のピーク比と比べて1.45~ 4.2倍であることが確認された。これらを実施例2と同じ方法で円柱状に成形し、これから切出した試験片で磁 歪特性を測定した。結果を図6に示す。

[0068]

磁歪値はピーク比が大きいほど大きく、 4.2のものでは一方向凝固材とほぼ同 等の磁歪値を示した。実用的にはピーク比は 1.5以上であることが好ましい。

[0069]

実施例8

実施例1と同じ方法で作製したフレークを 5mm以下に破砕した後、アセトンで希釈した熱硬化性エポキシ樹脂溶液に浸し、真空容器内でアセトンを気化、除去した。これをプレスにて980kPaの圧力で圧縮成形し、 150℃で樹脂を硬化させて、外径20mm、長さ20mmの円柱状の試料を得た。磁歪値は磁界強さ 239kA/mで 900~970ppmであった。

[0070]

サンプルを切断してフレークの配向を調べたところ、サンプルの円周表面と底面の 1~ 3mm程度の部分を除いては、フレークが圧縮方向に厚み方向が配向して

いるのが確認された。フレークは圧縮によって元の大きさの数分の1以下に破砕 されているのが確認された。

[0071]

実施例9

実施例1と同じ方法でホットプレスで成形体を作製した。アルゴン雰囲気中で 950℃で 0~96時間の熱処理を行ったところ、熱処理時間の増加と共に磁歪量が 増加することが確認された。組織観察をしたところ、結晶粒の成長が確認された。熱処理によって結晶粒が大きくなり、フレークに存在していた異常組織、内部 歪が消滅し、また配向性が向上したことが原因と思われる。

[0072]

実施例10

実施例1と同じフレークを10mm以下に破砕したものと35μm 以下に破砕した微粉末とを 8:2の割合で混合し、これを実施例2と同じ方法で放電プラズマ焼結にて積層成形した。放電プラズマ焼結では変形しながら成形が進むが、変形が完了するのに必要な時間が微粉末を加えない場合に対して 1/2の時間になった。

[0073]

続いて、実施例2と同じ1000℃で同じ時間の熱処理を行ったところ、磁歪値は 950~1030ppm であった。再度熱処理を行ったところ、磁歪値は1200~1280ppm に向上した。

[0074]

最初の熱処理だけでは、微粉末であった部分の配向が乱れたまま残っていたものが、2回目の熱処理で結晶成長によって消失したことが原因と考えられる。生産性を考えると放電プラズマ焼結にかかる時間は短いほうがよいが、その後の熱処理時間が長くなる。また、微粉末が多すぎると酸素濃度の増加に結びつくことも懸念される。

[0075]

以上の理由から焼結助材としての微粉末の量は30質量%以下が好ましい。焼結助材としての効果を高めるため、母材の組成に融点降下元素であるB、Si、Cなどを、磁歪特性を著しく阻害しない範囲で添加した微粉末を用いてもよい。

[0076]

実施例11

溶湯急冷フレーク材を積層し成形・熱処理して得られた超磁歪材で、油圧バルブアクチュエータを作製し、性能テストを実施した。変位量、耐久性は一方向凝固材で作製したものとほぼ同等であった。製品間の性能のバラツキは一方向凝固材で作製したものの 1/2以下であることが確認された。

[0077]

実施例12

図7にフレーク材の厚み方向に成長する柱状晶(断面観察から計測される柱状晶の成長方向と板厚方向とのなす角度が15°以内である柱状晶)の体積比率と磁 歪量(柱状晶のみの場合を 100としたときの相対値)との関係を示す。また、図 8にフレーク材の平均厚みと厚みのばらつきと柱状晶(上記と同)の体積比率との関係を示す。なお、フレーク材の厚みと柱状晶の体積比率の計測(画像解析装置で柱状晶とそれ以外の部分の面積を測定し、この面積比を体積比とした)においては、 1つのデータ当たり 5視野以上の断面観察を行い、これらの結果の平均値を測定値とした。

[0078]

図7から明らかなように、柱状晶を体積比で 70%以上含むフレーク材、すなわち等軸晶と柱状晶の体積比が 0:100~ 30:70の範囲にあるフレーク材であれば、実用上十分な磁歪量が得られることが分かる。また、図8からは、フレーク材の平均厚みが10μm 未満の場合は厚み方向に成長する柱状晶が得られにくく、また平均厚みが1000μm を超える場合にも厚み方向に成長する柱状晶が得られにくいことがわかる。さらに、厚みのばらつきが大きいほど厚み方向に成長する柱状晶が得られにくく、厚みのばらつきは 20%以下が好ましいことが分かる。

[0079]

実施例13

平均厚み 100μm、幅 2mm、長さ 5~ 100mmの長尺リボンを粉砕した後、目開き 500μm の篩を通して成形用フレーク材を得た。多くのフレーク材の形状は厚み 100μm のままで厚み方向に破砕された状態であった。フレーク材の70質量%

以上は短径が 300~ 900 μm であった。残りのフレーク材は 300 μm より小さい ものであった。これらの混合物を実施例 1 と同様な方法で成形した。

[0080]

次に、同じ長尺リボンを粉砕した後、目開き 300μm の篩を通して成形用フレーク材を得た。多くのフレーク材の形状は厚み 100μm のままで厚み方向に破砕された状態であった。フレーク材の70質量%以上は短径が 100~ 300μm であった。残りのフレーク材は 100μm より小さいものであった。これらの混合物を実施例1と同様な方法で成形した。

[0081]

両者の磁歪量を比較したところ、後者の磁歪量は前者のそれの 13%にすぎず、 成形体の結晶方位がほとんど配向していないことが分かった。この結果から、フ レーク材の短径が厚みの 3倍以上ないと、厚み方向に揃えて積層することは難し いことが分かる。

[0082]

次に、同じ長尺リボンを 5~10mm、10~20mm、20~40mm、40~60mm、60~ 100 mmに裁断して得られた各フレーク材と、 2~ 5mmに裁断したフレーク材とを、質量比で 8:2の割合でそれぞれ混合し、これら混合物をそれぞれ直径 200mmの容器に入れ、振動を加えて厚み方向に積層するか否かを調べた。その結果、 5~10mm、10~20mm、20~40mmの各フレーク材を混合したものは、短時間で厚み方向にほば積層したのに対して、40~60mm、60~ 100mmの各フレーク材を混合したものは、長いフレークが短時間では積層しなかった。このことから、フレーク材の長径は短径の20倍以下が好ましいことが分かる。

[0083]

実施例14

図9に、実施例1と同様にして作製した試料の酸素濃度と抗折強度との関係を示す。最も低い酸素濃度の試料の抗折強度を 100とした相対強度で酸素の影響を示した。酸素濃度の増加と共に抗折強度が低下し、酸素濃度20000ppmを境にして強度が大きく変化していることが分かる。さらに、酸素濃度が増加すると形状を維持することができず、自己崩壊してしまった。超磁歪材の機械的信頼性が保証

できる酸素濃度は20000ppm以下であり、好ましくは15000ppm以下、さらには好ましくは10000ppm以下である。

[0084]

実施例15

図10に、実施例1と同様にして作製した試料のフッ素濃度と抗折強度との関係を示す。最も低いフッ素濃度の試料の抗折強度を 100とした相対強度でフッ素の影響を示した。酸素と同様にフッ素は機械的信頼性を損う不純物であり、主に希土類原料から侵入する。フッ素濃度の増加と共に抗折強度が低下し、フッ素濃度200ppm付近を境にして強度が大きく変化していることが分かる。超磁歪材の機械的信頼性が保証できるフッ素濃度は200ppm以下であり、好ましくは150ppm以下、さらには好ましくは100ppm以下である。

[0085]

【発明の効果】

以上説明したように、本発明によれば、フレーク状の溶湯急冷合金を用いることによって、磁歪特性や機械的特性などに優れ、かつ生産性の向上や材料の無駄を省くことにより製造コストを大幅に低減した、すなわち高性能で安価な超磁歪材料を再現性よく提供することが可能となる。そして、このような超磁歪材料を用いることによって、磁歪アクチュエータや磁歪センサの特性や信頼性を高めると共に、製造コストの低減を図ることができる。

【図面の簡単な説明】

- 【図1】 本発明の一実施形態による超磁歪材料の要部構成を模式的に示す図である。
- 【図2】 溶湯急冷フレーク材を積層した際の積層状態のばらつきを説明する ための図である。
 - 【図3】 本発明で用いる溶湯急冷フレーク材の形状例を示す斜視図である。
- 【図4】 溶湯急冷速度と溶湯急冷フレーク材の結晶状態との関係を説明する ための図である。
- 【図5】 本発明の一実施例で用いた放電プラズマ焼結装置の概略構造を示す 図である。

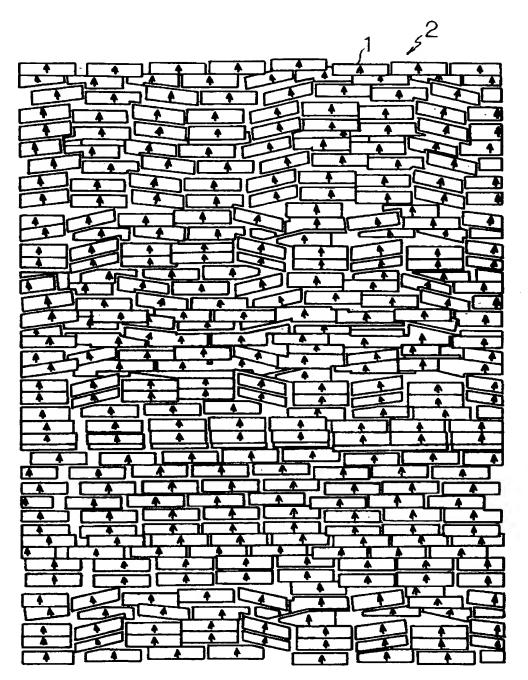
- 【図6】 溶湯急冷フレーク材の結晶配向対ランダム配向のピーク比と磁歪値 との関係を示すグラフである。
- 【図7】 溶湯急冷フレーク材の厚み方向に成長する柱状晶の体積比率と磁歪量(相対値)との関係を示す図である。
- 【図8】 溶湯急冷フレーク材の平均厚みおよび厚みのばらつきと厚み方向に成長する柱状晶の体積比率との関係を示す図である。
 - 【図9】 超磁歪材料の酸素濃度と抗折強度との関係を示す図である。
 - 【図10】 超磁歪材料のフッ素濃度と抗折強度との関係を示す図である。
- 【図11】 溶湯急冷フレーク材の厚み方向と結晶方位との成す角度を測定する方法を説明するための図である。
 - 【図12】 従来の一方向凝固材の切り出しを示す概略斜視図である。
 - 【図13】 従来の一方向凝固材の概略断面図である。

【符号の説明】

- 1 ……溶湯急冷フレーク材
- 2 ……超磁歪材料

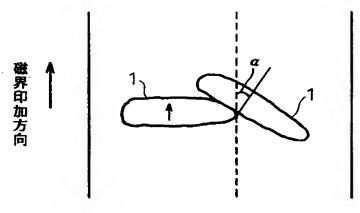
【書類名】 図面

【図1】

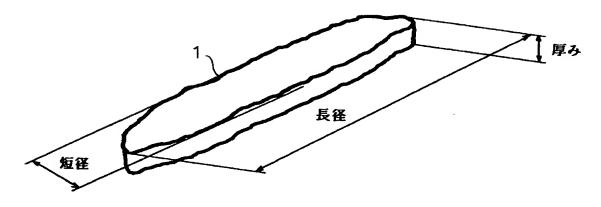


積層体断面模式図(矢印が配向方向)

【図2】

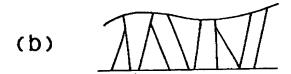


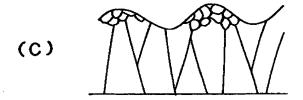
【図3】



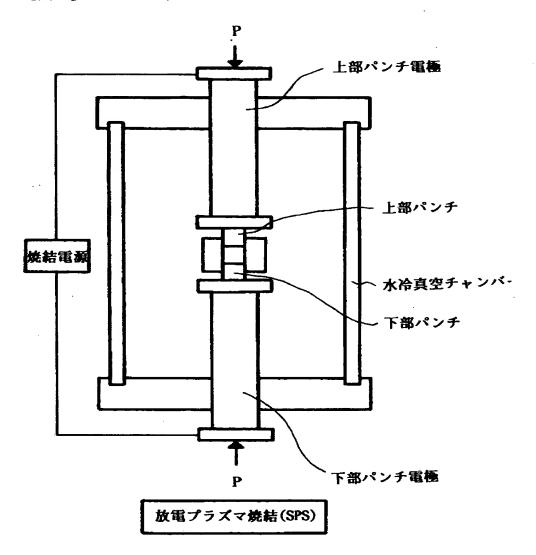
【図4】



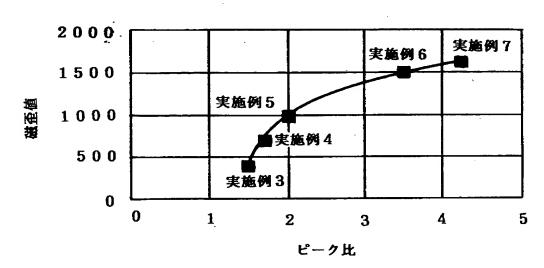




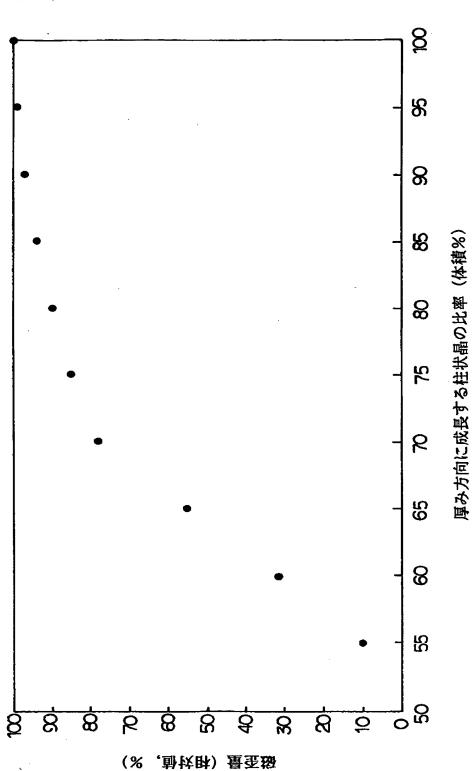
【図5】



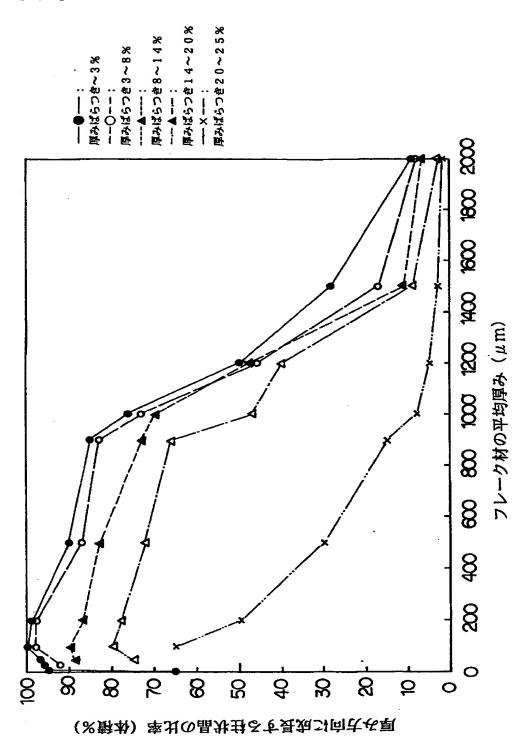
【図6】



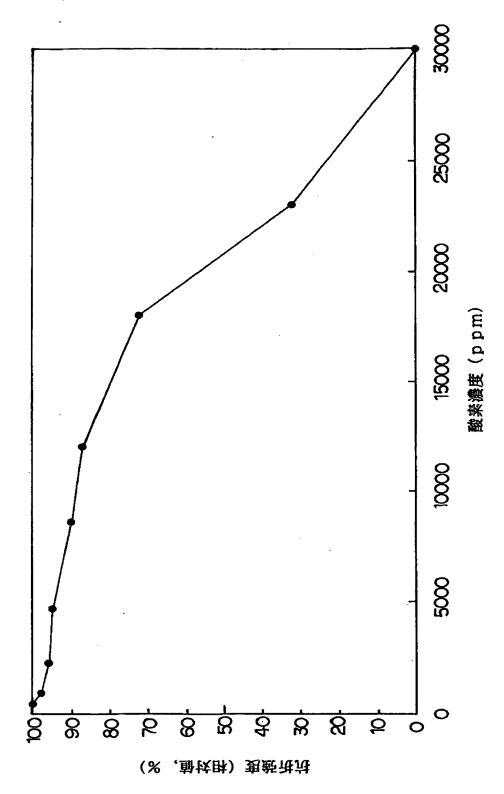




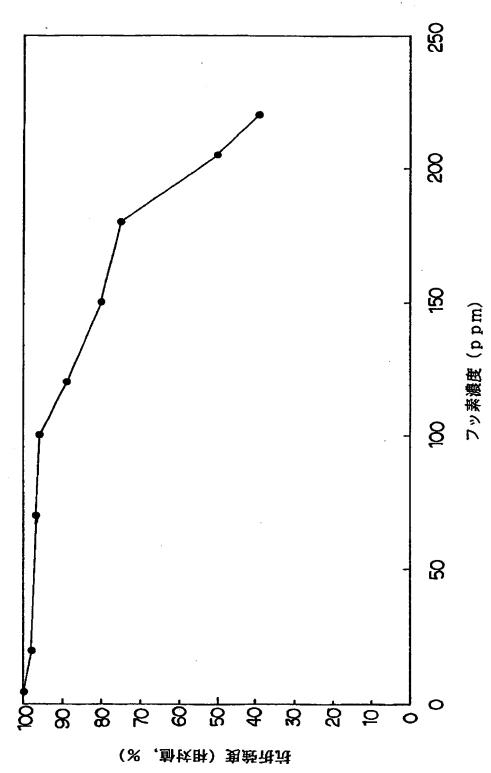




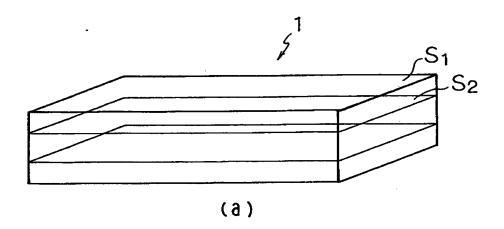


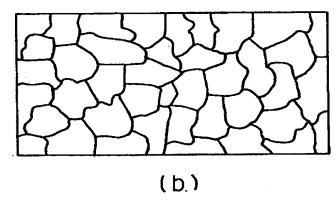




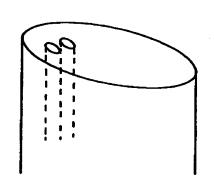


【図11】

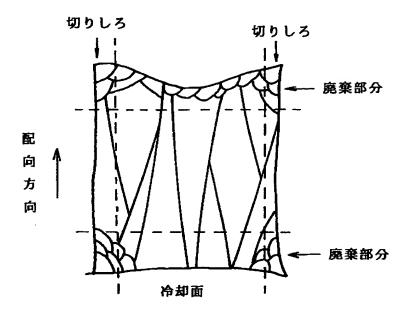




【図12】



【図13】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 磁歪材料の利用効率や製造歩留りを高めると共に、酸素濃度の増加などによる特性の低下を抑制することによって、高性能な希土類-遷移金属系の超磁歪材料を安価に提供する。

【解決手段】 希土類元素と遷移金属元素とを主成分とする合金からなると共に、厚み方向に伸びる柱状晶を主体とする溶湯急冷フレーク材 1 が、その厚み方向に積層し、これをホットプレスや放電プラズマ焼結などにより一体化した超磁歪材料 2 である。溶湯急冷フレーク材 1 の厚み方向への柱状晶の結晶方位は、例えば略 {1,1,0} もしくは略 {1,1,1} である。

【選択図】 図1

出願人履歴情報

識別番号

[000003078]

1. 変更年月日

1990年 8月22日

[変更理由]

新規登録

住 所

神奈川県川崎市幸区堀川町72番地

氏 名

株式会社東芝